PATENT COOPERALION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

;

Commissioner
US Department of Commerce

United States Patent and Trademark Office, PCT

2011 South Clark Place Room

CP2/5C24

Arlington, VA 22202

Date of mailing (day/month/year) 22 May 2001 (22.05.01)	ETATS-UNIS D'AMERIQUE in its capacity as elected Office
International application No.	Applicant's or agent's file reference
PCT/EP00/09135	NAE19991098PC
International filing date (day/month/year)	Priority date (day/month/year)
18 September 2000 (18.09.00)	20 September 1999 (20.09.99)
Applicant	
PÜTTER Harmann et al	

The designated Office is hereby notified of its election made:
X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
04 April 2001 (04.04.01)
in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
The shares
The election X was
was not
made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Charlotte ENGER

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35



PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To

ISENBRUCK, Günter Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenb. Theodor-Heuss-Anlage 12 68165 Mannheim ALLEMAGNE

06 November 2000 (06.11.00)	
Applicant's or agent's file reference NAE19991098PC	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/EP00/09135	International filing date (day/month/year) 18 September 2000 (18.09.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 20 September 1999 (20.09.99)

- 1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- 2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- 3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- 4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date

Priority application No.

Country or regional Office or PCT receiving Office

Date of receipt of priority document

20 Sept 1999 (20.09.99)

199 44 990.2

DE

19 Octo 2000 (19.10.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Telephone No. (41-22) 338.83-38

G. Bähr

Authorized officer

Facsimile No. (41-22) 740.14.35



(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts		siehe Mitteilung über die Ubermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit								
NAE19991098PC		zutreffend, nachstehend								
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmelde	edatum	(Frühestes) Prid	oritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)						
PCT/EP 00/09135	(Tag/Monat/Jahr) 18/09/20	00	20/	/09/1999						
Anmelder										
BASF AKTIENGESELLSCHAFT	BASF AKTIENGESELLSCHAFT									
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Int			stellt und wird de	em Anmelder gemäß						
Dieser internationale Recherchenbericht umfa X Darüber hinaus liegt ihm jew	•	Blätter. sem Bericht genannten l	Unterlagen zum	Stand der Technik bei.						
Grundlage des Berichts										
 a. Hinsichtlich der Sprache ist die inter durchgeführt worden, in der sie eing 										
Die internationale Recherche Anmeldung (Regel 23.1 b)) o		ner bei der Behörde eing	gereichten Über	setzung der internationalen						
b. Hinsichtlich der in der internationaler Recherche auf der Grundlage des S	equenzprotokolls durchge	eführt worden, das	Aminosäureseq	uenz ist die internationale						
in der internationalen Anmel	_									
zusammen mit der internation bei der Behörde nachträglich	-	_	ereicht worden	IST.						
bei der Behörde nachträglich	_		t							
Die Erklärung, daß das nach internationalen Anmeldung i	träglich eingereichte schr	iftliche Sequenzprotokol	II nicht über den	Offenbarungsgehalt der						
	·			equenzprotokoll entsprechen,						
2. Bestimmte Ansprüche hab	en sich als nicht recher	chierbar erwiesen (siel	he Feld I).							
3. MangeInde Einheitlichkeit	der Erfindung (siehe Fel	d II).								
Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfing	dung									
X wird der vom Anmelder eing	•	•								
wurde der Wortlaut von der I	Behörde wie folgt festgese	etzt:								
,				·						
5. Hinsichtlich der Zusammenfassung										
wird der vom Anmelder eing wurde der Wortlaut nach Re Anmelder kann der Behörde Recherchenberichts eine Ste	gel 38.2b) in der in Feld II innerhalb eines Monats n	l angegebenen Fassung								
6. Folgende Abbildung der Zeichnungen is	st mit der Zusammenfassı	ung zu veröffentlichen: A								
wie vom Anmelder vorgesch	_		X	keine der Abb.						
weil der Anmelder selbst kei										
weil diese Abbildung die Erfi	ridung besser kennzeichn	et.								

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/09135

A.	KLA	SSII	FIZIERUN	G DES	ANMEL	DUNGS	GEGEN	STANDES
TI	PK	7	C25B	3/0	0			

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

CHEM ABS Data, EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN							
Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.					
X	US 4 544 450 A (ERMANNO OBERRAUCH) 1. Oktober 1985 (1985-10-01) Spalte 4, Zeile 6 - Zeile 12 Spalte 5 -Spalte 6; Beispiele 5,6 Spalte 1, Zeile 31 - Zeile 53	1-3,6					

ΙXΙ	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen
لنا	entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* ätteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
 P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

17. Januar 2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

30/01/2001

Bevollmächtigter Bediensteter

Groseiller, P

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/09135

	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	odes Teils Dets Assessed No
Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommer	nden Teile Betr. Anspruch Nr.
A	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 20, 19. Mai 1980 (1980-05-19) Columbus, Ohio, US; abstract no. 171531, MONAKHOVA, I. S.: "Synthesis and reactions of some methoxy derivatives of furan compounds" XP002156120 Zusammenfassung & VSES. NAUCHN. KONF. KHIM. TEKHNOL. FURANOVYKH SOEDIN., 'TEZISY DOKL.!, 3RD (1978), 136. EDITOR(S): STRADYN, YA. P. PUBLISHER: ZINATNE, RIGA, USSR., 1978,	1,2,9
A /	US 4 318 783 A (HANS-ROLF BUHMANN) 9. März 1982 (1982-03-09) Spalte 13 -Spalte 14; Ansprüche 1-3	. 1
A	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 89, no. 22, 27. November 1978 (1978-11-27) Columbus, Ohio, US; abstract no. 187868, HORANYI, GYORGY ET AL: "Electrochemical behavior of ethylene glycol and its oxidation products at the platinum electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25, 1978,	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No PCT/EP 00/09135

Patent document cited in search repor	rt	Publication date	·	Patent family member(s)	Publication date	
US 4544450	A	01-10-1985	IT AT BE CH DE DK FR GB JP NL NO SE	1132194 B 371151 B 302181 A 889625 A 650277 A 3127975 A 311881 A 2486968 A 2080335 A,B 57051271 A 8103367 A 812406 A 8104359 A	25-06-1986 10-06-1983 15-10-1982 14-01-1982 15-07-1985 06-05-1982 16-01-1982 22-01-1982 03-02-1982 26-03-1982 01-02-1982 18-01-1982 16-01-1982	
US 4318783	A	09-03-1982	DE DE DE DE EP	2851732 A 2923531 A 2930480 A 2961906 D 0012240 A 55079885 A	12-06-1980 11-12-1980 12-02-1981 04-03-1982 25-06-1980 16-06-1980	

100

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 2 8 JAN 2002

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

			(Altikei 30 uliu	negel / 0 i C	75
Aktenzeich	en de	s Anmelders oder Anwalts	WEITERES VORCE		ilung über die Übersendung des internationalen
NAE1999	9109	8PC	WEITERES VORGE	HEN vorläufigen	Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)
Internationa	ales A	ktenzeichen	Internationales Anmelded	latum(Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)
PCT/EPC	0/09	135	18/09/2000		20/09/1999
International C25B3/0		tentklassifikation (IPK) oder i	nationale Klassifikation und	IPK	
Anmelder					
BASF AK	(TIEI	NGESELLSCHAFT. et a	al.		
1. Diese Behör	r inte	rnationale vorläufige Prürstellt und wird dem Anm	fungsbericht wurde von elder gemäß Artikel 36 ü	der mit der internation übermittelt.	onalen vorläufigen Prüfung beauftragten
2. Diese	r BEI	RICHT umfaßt insgesamt	5 Blätter einschließlich	dieses Deckblatts.	
u B	nd/od Sehörd	ter Zeichnungen, die geä	ndert wurden und diese chtigungen (siehe Rege	m Bericht zugrunde	tter mit Beschreibungen, Ansprüchen liegen, und/oder Blätter mit vor dieser tt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT
3. Diese	r Ber ⊠	icht enthält Angaben zu f Grundlage des Berichts			
П		Priorität			
111				it, erfinderische Täti	gkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
IV		Mangelnde Einheitlichk		* 1 M*-1 - 1 - 1 N - 1 N - 1 N	at a conflict of the transfer of Table 19 and the conflict
V	×	Begründete Feststellun gewerblichen Anwendb	g nach Artikel 35(2) hins arkeit; Unterlagen und E	sichtlich der Neuheit, Erklärungen zur Stüt	, der erfinderischen Tätigkeit und der zung dieser Feststellung
VI		Bestimmte angeführte l	Jnterlagen	-	-
VII		-	internationalen Anmeldı	ıng	
VIII	Ø	Bestimmte Bemerkunge	erı zur internationalen A	nmeldung	•
Datum der	Einrei	chung des Antrags		Datum der Fertigstellu	ing dieses Berichts
04/04/20	01			24.01.2002	
	auftra	nschrift der mit der internatio gten Behörde:	nalen vorläufigen	Bevollmächtigter Bedi	ensteter Estate CES MICROS MIC
<u></u>	D-8	opäisches Patentamt 0298 München +49 89 2399 - 0 Tx: 523656	epmu d	Cappadonia, M	
	Fax	: +49 89 2399 - 4465		Tel. Nr. +49 89 2399 8	3029



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09135

I. Grundlage des Berichts 1. Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)): Beschreibung, Seiten: ursprüngliche Fassung 1-11 Patentansprüche, Nr.: ursprüngliche Fassung 1-9 2. Hinsichtlich der Sprache: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist. Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)). die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)). die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3). 3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das: in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist. zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. □ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist. bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

☐ Beschreibung, Seiten:☐ Ansprüche, Nr.:☐ Zeichnungen, Blatt:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09135

5.	Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den
	angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich
	eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen;sie sind diesem Bericht beizufügen).

- 6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
- V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- 1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 4,5,7-9

Nein: Ansprüche 1-3,6

Erfinderische Tätigkeit (ET)

Ansprüche 4,5,7-9

Nein: Ansprüche

Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)

Ja: Ansprüche 1-9

Nein: Ansprüche

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken: siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35 hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Der Gegenstand des unabhängigen Anspruchs 1 scheint nicht neu zu sein (Art. 33 PCT). In der tat, es ist aus der Beschreibung zu entnehmen, daß "eine sukzessive Übertragung von Oxidations- und Reduktionsäquivalente an einer Elektrode beispielweise in der zyklischen Voltametrie möglich ist" (Seite 2, Zeilen 8-9), deshalb ist jedes zyklischen Voltammogram in Anwesenheit einer organischen Verbindung neuheitsschädlich für den Gegenstand des Anspruchs 1. Das Umpolen der Elektrode ist gemäß Anspruch 1 nicht ausgeschlossen.

Darüber hinaus ist aus der Beschreibung auch zu entnehmen, daß "in einer bevorzugtern Ausführungsform der Erfindung, die organische Verbindung mit Wasserstoff an der einen Elektrode hydriert wird, wobei der Wasserstoff als Produkt an der anderen Elektrode entsteht oder dem Elektrolyskreis von außen zugeführt wird" und später "der Hydrierkatalysator in Form einer Suspension gebracht wird", in diesem Fall, es handelt um eine elektrochemische Oxidation gefolgt von einer katalytischen Hydrierung, wie in US-A-4544450 (D1) offenbart wird (siehe D1, Spalte 1, Zeilen 31-53, Spalte 4, Zeilen 6-12, Ansprüche 1-7 und abstract). D1 offenbart in der Zusammenfassung "...das an der Anode hergestellte Produktwird mit dem kathodischen Produkt der Elektrolyse in Anwesenheit eines geeigneten Katalysators reagieren. Der Katalysator kann die Anode selber sein". D1 ist deshalb neuheitschädlich für die Ansprüche 1-3 und 6 (Art. 33 PCT).

Darüber hinaus sind elektrochemische Verfahren an Mischpotential, wobei eine Elektrode gleichzeitig als Kathode und Anode dient, wie, zum Beispiel, bei gleichzeitiger Abscheidung von Kupfer und Oxidation von Methanol, wohl bekannt.

Die in den abhängigen Ansprüchen 4,5,7-9 enthaltene Merkmalskombination ist aus dem vorliegenden Stand der Technik weder bekannt, noch wird sie durch ihn nahegelegt.

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Die Ansprüche 1-9 werden nicht, wie in Artikel 6 PCT vorgeschrieben, durch die Beschreibung gestützt, da ihr Umfang über den durch die Beschreibung und die Zeichnungen gerechtfertigten Umfang hinausgeht.

Aus Beispiel 2, kann man entnehmen, daß eine organische Verbindung an der Anode elektrochemisch oxidiert wird und dann chemisch, nicht elektrochemisch, reduziert wird, und zwar Furan wird im Methanol zu 2,5- Dimethoxyfuran oxidiert, und dann mit Hilfe von Pd, einem Hydrierungkatalysator, und das Wasserstoff, das an der Katode entwickel wurde, zu 2,5- Dimethoxytetrahydrofuran reduziert.

Das Verfahren von Beispiel 1 ist unklar, es wird behauptet, daß die Kathode in der Lage ist katalytisch zu hydrieren (siehe Beschreibung, Seite 10, Zeile 8). Aber eine elektrochemische Hydrierung von C in organischen Verbindungen entspricht immer einer Reduktion, die Definition gemäß an der Kathode stattfindet. Es ist aber nicht erläutert, wie Furan in Beispiel 1 zuerst an einer Kathode zu 2,5-Dimethoxyfuran oxidiert wird.

Es gibt deshalb nur ein einziges aussagekräftiges Beispiel, d.h. elektrochemische Oxidation von Furan an einer Gasdiffusionanode in Methanol und sukzessive katalytische Hydrierung an einer Anode, die Pd enthalten.

Es gibt z. B. keinen Hinweis, daß Oxidation und Reduktion elektrochemisch stattfinden, daß jede organische Verbindung durch solche Verfahren umgewandelt wird, daß sowohl die Oxidation-Reduktion Reihenfolge als auch die Reduktion-Oxidation Reihenfolge wirksam ist, daß das Prozeß auch mit massive Elektrode ohne Hydrierkatalysatoren und in jedem Elektrolyt stattfindet, wie Ansprüche 1-9 beanspruchen.

Es ist deshalb auch fraglich, ob die vorliegende Anmeldung die Erfordernisse des Art. 5 PCT erfüllt.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 29. März 2001 (29.03.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/21858 A1

(51) Internationale Patentklassifikation7:

C25B 3/00

(21) Internationales Aktenzeichen: \

PCT/EP00/09135

(22) Internationales Anmeldedatum:

18. September 2000 (18.09.2000)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

- (30) Angaben zur Priorität: 199 44 990.2 20. September 1999 (20.09.1999) DE
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): PÜTTER, Hermann [DE/DE]; Haardter Strasse 1a, 67433 Neustadt (DE).

GUTENBERGER, Guido [DE/DE]; Oppelner Strasse 31, 53119 Bonn (DE).

- (74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, 68165 Mannheim (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): CA, JP, US.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht:

- Mit internationalem Recherchenbericht.
- Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.



- (54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR ELEKTROLYTISCHEN UMWANDLUNG VON ORGANISCHEN VERBINDUNGEN
- (57) Abstract: The invention relates to a method for electrolytically converting at least one organic compound in an electrolysis cell, whereby the organic compound is both oxidised and reduced at one electrode.
- (57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur elektrolytischen Umwandlung mindestens einer organischen Verbindung in einer Elektrolysezelle, wobei die organische Verbindung an einer Elektrode sowohl oxidiert als auch reduziert wird.



5

15

20

Verfahren zur elektrolytischen Umwandlung von organischen Verbindungen

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur elektrolytischen Umwandlung von organischen Verbindungen, bei der eine Elektrode zugleich dazu dient, sowohl Oxidationsals auch Reduktionsäquivalente zu übertragen.

Ein Ziel der präparativen organischen Elektrochemie ist es, die bei einem elektrochemischen Verfahren auftretenden Prozesse an beiden Elektroden parallel zu nutzen.

Ein Beispiel für ein solches Verfahren ist etwa die oxidative Dimerisierung von 2,6-Dimethylphenol, die mit der Dimerisierung von Maleinsäureestern gekoppelt wird (M. M. Baizer, in: H. Lund, M. M. Baizer (Hrsg.), Organic Electrochemistry, Marcel Dekker, New York, 1991, Seiten 142 ff.).

Ein weiteres Beispiel ist die gekoppelte Synthese von Phthalid und t-Butylbenzaldehyd, wie in der DE 196 18 854 beschrieben.

Es ist aber auch möglich, den Kathoden- und den Anodenprozeß zu nutzen, um ein einziges Produkt herzustellen oder ein Edukt zu zerstören. Beispiele für solche elektrochemischen Verfahren sind etwa die Erzeugung von Buttersäure (Y. Chen, T. Chou, J. Chin. Inst. Chem. Eng. 27 (1996) Seiten 337 - 345), die anodische Auflösung von Eisen, die mit der kathodischen Bildung von Ferrocen gekoppelt wird (T. Iwasaki et al., J. Org.

Chem. 47 (1982) Seiten 3799 ff.) oder der Abbau von Phenol (A. P. Tomilov et al., Elektrokhimiya 10 (1982) Seiten 239).

Eine neue Möglichkeit eröffnet sich, wenn Oxidation und Reduktion an ein und derselben Elektrode stattfinden. Dies bedeutet, daß ein Substrat gleichzeitig oder nacheinander sowohl Oxidations- als auch Reduktionsäquivalente empfängt.

Eine sukzessive Übertragung von Oxidations- und Reduktionsäquivalenten an einer Elektrode ist beispielsweise in der cyclischen Voltametrie möglich, bei der sich das Potential der Elektrode mit vorgegebener Geschwindigkeit innerhalb einer Spanne zwischen positiven und negativen Werten hin- und herbewegt (s. z. B. D. Sawyer, A. Sobkowiak, J. Roberts Jr., Electrochemistry for Chemists, Second Ed., Seiten 68 – 78, John Wiley & Sons, Inc. New York 1995).

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung wurde nun festgestellt, daß eine Anode in der Lage ist, Reduktionsäquivalente auf ein Substrat zu übertragen, das bereits anodische Redoxäquivalente aufgenommen hat.

Das Verfahren ist nicht auf die Anode beschränkt, sondern unter geeigneten Bedingungen ebenso an der Kathode durchführbar.

Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, ein elektrochemisches Verfahren bereitzustellen, in dem eine organische Verbindung in einem Elektrodenprozeß oxidiert wird, und das Oxidationsprodukt an derselben Elektrode reduziert wird.

25

5

10

Diese Aufgabe wird gelöst durch das erfindungsgemäße Verfahren zur elektrolytischen Umwandlung mindestens einer organischen Verbindung in einer Elektrolysezelle, wobei die organische Verbindung an einer Elektrode sowohl oxidiert als auch reduziert wird.

In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung läuft das erfindungsgemäße Verfahren in einer ungeteilten Zelle ab.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der Erfindung wird die organische Verbindung an der Anode sowohl oxidiert als auch reduziert, vorzugsweise hydriert.

In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung wird die organische Verbindung mit Wasserstoff an der einen Elektrode hydriert, wobei der Wasserstoff als Produkt an der anderen Elektrode entsteht oder dem Elektrolysekreis von außen zugeführt wird.

10

5

In einer anderen bevorzugten Ausführungsform der Erfindung wird die organische Verbindung an der Kathode sowohl reduziert als auch oxidiert, vorzugsweise oxygeniert. Im Folgenden wird die Erfindung am Beispiel von Anoden erläutert, welche gleichzeitig oxidieren und hydrieren.

15

Als organische Verbindungen sind im erfindungsgemäßen Verfahren prinzipiell alle organischen Verbindungen mit reduzierbaren Gruppen als Edukte einsetzbar, vorzugsweise ein Furan oder ein substituiertes Furan.

Das Verfahren ist nicht auf Furan oder substituierte Furane beschränkt, sondern erstreckt sich auf alle Verbindungen und Verbindungsklassen, die im Rahmen der organischen Elektrochemie oxidierbar oder reduzierbar oder beides sind. Eine Übersicht über die Verbindungsklassen gibt H. Lund, M.M. Baizer, (Hrsg.) "Organic Electrochemistry", 3rd edition, Marcel Dekker, New York 1991.

25

Geeignete Verbindungen der genannten Klassen sind beispielsweise Doppelbindungen enthaltende Verbindungen wie

1) Olefine:

$$R_1$$
 R_2
 R_3
 R_2

5

25

worin R₁ bis R₄ jeweils für eine Alkyl-, Aryl-, Alkoxygruppe, ein Wasserstoffatom, (substituierte) Aminogruppen, einen Halogenrest oder Cyanogruppen stehen und wobei die Substituenten R₁ bis R₄ gleich oder unterschiedlich sein können.

Die Doppelbindungen können Bestandteil von offenkettigen oder ringförmigen Verbindungen sein, wobei sie sowohl Bestandteil des Rings als auch der Kette als auch beides sein können.

Ringförmige Systeme mit Doppelbindungen können im Rahmen der Erfindung insbesondere aromatische Systeme sein.

Bei den Verbindungen mit Ringstruktur kann/können ein oder mehrere Element(e) der Ringstruktur ein gegebenenfalls substituiertes Heteroatom sein, wie N, S, O, P.

Die ringförmigen Verbindungen können einen oder mehrere funktionelle Substituenten der folgenden Art als Substituenten beinhalten:

Carboxylgruppen, Carbonylgruppen (und N-Analoge), Carboxymethylgruppen, Nitrilgruppen, Isonitrilgruppen, Azo- (Azoxy-)gruppen, Nitrogruppen, Aminogruppen, subs

2) Alkine

5

$$R_5 - \equiv -R_6$$

worin R_5 und R_6 jeweils für ein Wasserstoffatom, eine Aryl-, Alkyl-, Carboxyl- oder . Alkoxycarbonylgruppe stehen, wobei die Substituenten R_5 und R_6 gleich oder unterschiedlich sein können.

10 3) Carbonylverbindungen

worin R₇ und R₈ jeweils für eine Aryl-, Alkyl-, Alkoxy-, Aryloxygruppe und substituierte
15 Aminogruppen oder einen Halogenrest stehen, wobei die Substituenten R₇ und R₈ gleich
oder unterschiedlich sein können.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens verwendet man Furan. Neben Furan lassen sich als substituierte Furane beispielsweise die folgenden Verbindungen bevorzugt nennen:

Furfural(Furan-2-aldehyd), alkylsubstituierte Furane, Furane mit –CHO, -COOH, -COOR, worin R für eine Alkyl-, Benzyl-, Aryl-, insbesondere für eine C_1 - bis C_4 -Alkylgruppe steht, -CH(OR₁)(OR₂), worin R₁und R₂ gleich oder unterschiedlich sein können und R₁ und R₂ jeweils für eine Alkyl-, Benzyl-, Aryl-, insbesondere C₁- bis C₄-Alkylgruppe stehen und -CN-Gruppen in 2-, 3-, 4- oder 5-Stellung.

Bei der erfindungsgemäßen Umsetzung organischer Verbindungen können Lösungsmittel und Leitsalze eingesetzt werden, wie sie in H. Lund, M.M. Baizer, (Hrsg.) "Organic Electrochemistry", 3rd edition, Marcel Dekker, New York 1991, beschrieben werden.

20

Die Oxidation von Furanen erfolgt erfindungsgemäß bevorzugt in Gegenwart von Methanol oder in Gegenwart von Ethanol oder einem Gemisch davon, bevorzugt jedoch in Gegenwart von Methanol. Diese Substrate können dabei gleichzeitig Reaktand und Lösungsmittel sein.

5

20

25

30

Als Lösungsmittel bei der Umsetzung von Furanen sind neben der organischen Verbindung und der zur Oxidation verwendeten Verbindung generell alle geeigneten Alkohole einsetzbar.

- Als Leitsalze können neben NaBr bei der Umsetzung von Furanen im erfindungsgemäßen Verfahren beispielsweise auch Alkali- und/oder Erdalkalimetallhalogenide eingesetzt werden, wobei als Halogenide Bromide, Chloride und Iodide denkbar sind. Ebenso sind auch Ammoniumhalogenide einsetzbar.
- Druck und Temperatur können an die Bedingungen, die bei katalytischen Hydrierungen üblich sind, angepaßt werden.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens ist die Reaktionstemperatur $T < 50^{\circ}$ C, vorzugsweise $T < 25^{\circ}$ C, der Druck p < 3bar und der pH-Wert im neutralen Bereich.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens werden zusätzlich zu den Edukten, die in die vorzugsweise ungeteilte Elektrolysezelle eingebracht werden, Zwischenprodukte zugeführt. Als Zwischenprodukt wird dasjenige mindestens eine Produkt bezeichnet, das durch die erfindungsgemäße elektrolytische Oxidation der mindestens einen organischen Verbindung, insbesondere eines Furans oder eines substituierten Furans oder eines Gemisches aus zwei oder mehr davon, erhalten wird und sich deshalb im Elektrolysekreislauf befindet. Die Konzentration der zusätzlichen Zwischenprodukte wird durch übliche elektrochemische und elektrokatalytische Parameter, wie beispielsweise Stromdichte, Katalysatorart und -menge, eingestellt, oder das Zwischenprodukt wird dem Kreislauf zugegeben.

Bezüglich der speziellen Wahl des Materials der Elektroden besteht im erfindungsgemäßen Verfahren keine Beschränkung, solange sich die Elektroden für das wie vorstehend beschriebene Verfahren eignen.

5 Vorzugsweise werden in der Elektrolysezelle Graphitanoden verwendet.

10

15

20

25

30

Was die Geometrie der Elektroden in der Elektrolysezelle anbelangt, so existieren dafür im wesentlichen im Rahmen der vorliegenden Erfindung keine Beschränkungen. Als bevorzugte Geometrien sind beispielsweise plan-parallele Elektrodenanordnungen und ringförmige Elektrodenanordnungen zu nennen.

In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung ist die Anode in Kontakt mit mindestens einem Hydrierkatalysator. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform ist der mindestens eine Hydrierkatalysator Bestandteil einer Gasdiffusionselektrode. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der Erfindung ist die Anode eine mit Edelmetall beschichtete Graphitelektrode, bestehend aus Platten, Netzen oder Filzen. In einer anderen bevorzugten Ausführungsform der Erfindung wird der Hydrierkatalysator in Form einer Suspension im Elektrolyten ständig mit der Anode in Kontakt gebracht. Hierbei wird der Hydrierkatalysator, d. h. das katalytisch wirksame Material, in der Zelle umgepumpt oder auf eine entsprechend strukturierte Anode angeschwemmt. Eine derartige Anschwemmelektrode ist beispielsweise in DE 196 20 861 beschrieben.

Im Rahmen des erfindungsgemäßen Verfahrens wird eine organische Verbindung unter Verwendung des Wasserstoffs, der als Produkt in dem Kathodenprozeß entsteht, an der Anode reduziert, vorzugsweise hydriert. Diese Hydrierung findet vorzugsweise so statt, daß die zu hydrierende Verbindung mit einem oder mehreren Hydrierkatalysatoren in Kontakt gebracht wird, welche ihrerseits mit der Anode in Kontakt gebracht werden.

Hinsichtlich der Auswahl an hydrieraktiven Katalysatoren bestehen im Rahmen des erfindungsgemäßen Verfahrens prinzipiell keine Beschränkungen. Sämtliche aus dem

Stand der Technik bekannten Katalysatoren sind dabei einsetzbar. Unter anderem sind dabei die Metalle der I., II. und VIII. Nebengruppe des Periodensystems zu nennen, insbesondere Co, Ni, Fe, Ru, Rh, Re, Pd, Pt, Os, Ir, Ag, Cu, Zn und Cd.

- Erfindungsgemäß ist es beispielsweise möglich, die Metalle unter anderem in feinverteilter Form einzusetzen. Beispiele unter anderen sind Raney-Ni, Raney-Co, Raney-Ag oder Raney-Fe, die jeweils auch weitere Elemente wie beispielsweise Mo, Cr, Au, Mn, Hg, Sn oder auch S, Se, Te, Ge, Ga, P, Pb, As, Bi oder Sb enthalten können.
- Ebenso können natürlich die beschriebenen hydrieraktiven Materialien ein Gemisch aus zwei oder mehreren der genannten Hydriermetalle umfassen, die gegebenfalls mit beispielsweise einem oder mehreren der oben genannten Elemente verunreinigt sein können.
- 15 Selbstverständlich ist es auch denkbar, daß das hydrieraktive Material auf einem inerten Träger aufgebracht ist. Als solche Trägersysteme können beispielsweise Aktivkohle, Graphit, Ruß, Siliciumcarbid, Aluminiumoxid, Siliciumdioxid, Titandioxid, Zirconiumdioxid, Magnesiumoxid, Zinkoxid oder Gemische aus zwei oder mehreren davon, z. B. als Suspension oder als feinverteiltes Granulat, eingesetzt werden.

20

25

In einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird das hydrieraktive Material auf Gasdiffusionselektroden-Grundmaterial aufgebracht.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, daß das Gasdiffusionselektroden-Grundmaterial mit einem hydrieraktiven Material beladen ist.

Als hydrieraktives Material, mit dem das Gasdiffusionselektrodensystem beladen ist, kommen alle wie oben beschriebenen Hydrierkatalysatoren in Frage. Selbstverständlich ist

es auch möglich, als hydrieraktives Material ein Gemisch aus zwei oder mehreren dieser Hydrierkatalysatoren einzusetzen.

Natürlich ist es im Rahmen des erfindungsgemäßen Verfahrens denkbar, daß das Gasdiffusionselektrodenmaterial mit hydrieraktivem Material beladen ist und zusätzlich hydrieraktives Material eingesetzt wird, das gleich oder unterschiedlich zu dem ist, mit dem das Gasdiffusionselektrodenmaterial beladen ist.

Darüber hinaus betrifft die vorliegende Erfindung in einer allgemeinen Form die Verwendung einer Gasdiffusionselektrode zur elektrolytischen Umwandlung einer organischen Verbindung, vorzugsweise einer ungesättigten organischen Verbindung in einer Elektrolysezelle.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die vorliegende Erfindung näher erläutern.

Beispiel 1

5

10

15

20

25

Es wurde eine ungeteilte Zelle mit 6 ringförmigen Elektroden mit einer Oberfläche pro Seite von 15,7 cm² eingesetzt. Die Elektroden wurden durch 5 Spacernetze von 0,7 mm Stärke voneinander getrennt.

Die Elektroden bestanden aus Graphitscheiben von je 5 mm Stärke, die auf einer Seite mit Gasdiffusionselektrodenmaterial belegt waren. Dieses Material wiederum war mit 5,2 g Pd/m² belegt.

Die Gasdiffusionselektrode wurde als Kathode geschaltet.

Der Elektrolyseansatz bestand aus 30 g Furan, 57,4 g 2,5-Dimethoxydihydrofuran, 2 g NaBr und 110,6 g Methanol.

Die Elektrolyse erfolgte bei 0,5 A, einer Temperatur von ca. 17 °C. Die Zellspannung stieg von 14,6 V auf 20,7 V. Die Elektrolyse wurde gaschromatographisch verfolgt.

Nach 1 F/mol Furan hatte sich der GC-Flächenprozentanteil von Furan von 22,7 % auf 17,8 % reduziert, der Dimethoxydihydrofurananteil blieb mit 31 Flächenprozent konstant. Gleichzeitig entstanden 0,9 % 2.5-Dimethoxytetrahydrofuran.

Dieses Beispiel zeigt, daß die Kathode in der Lage ist, katalytisch zu hydrieren. Bei Verwendung von Graphitscheiben allein - also nicht in Gegenwart eines Hydrierkatalysators - entsteht im Einklang mit der Literatur (H. Lund, M.M. Baizer, Organic Electochemistry, Marcel Dekker, New York, 1991, Seiten 720) mit guten Ausbeuten 2,5-Dimethoxydihydrofuran; 2,5-Dimethoxytetrahydrofuran wird nicht offenbart und wurde nicht gefunden.

15 Beispiel 2

Das Beispiel 2 verwendete die Anordnung aus Beispiel 1, wobei allerdings hier die Anode mit elektrokatalytisch aktivem Material bestückt war. Statt einer Gasdiffusions-Kathode wurde eine mit 5,2 g Pd/m² beladene Gasdiffusionselektrode als Anode eingesetzt.

20

10

Der Elektrolyseansatz bestand aus 30 g Furan, 57,4 g 2,5-Dimethoxydihydrofuran, 2 g NaBr und 110,6 g Methanol.

Die Elektrolyse erfolgte bei 0,5 A und einer Temperatur von 17 °C. Die Zellspannung stieg von 16,3 V auf 19,5 V. Die Elektrolyse wurde gaschromatographisch verfolgt.

Nach 1 F/mol Furan hatte sich der GC-Flächenprozentanteil von Furan von 22,7 auf 16,9 % reduziert, der GC-Flächenprozentanteil von 2,5-Dimethoxydihydrofuran hielt sich bei 30 %. Gleichzeitig entstanden 3,3 % 2,5-Dimethoxytetrahydrofuran.

Der Vergleich zeigt, daß die Anode sogar noch wirkungsvoller arbeitet als die Kathode. Es handelt sich bei dieser Anordnung also nicht um die reine Gegenwart von katalytisch aktivem Material in der Zelle.

Patentansprüche

5

1. Verfahren zur elektrolytischen Umwandlung mindestens einer organischen Verbindung in einer Elektrolysezelle

dadurch gekennzeichnet, daß

10

die organische Verbindung an einer Elektrode sowohl oxidiert als auch reduziert wird.

- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die organische Verbindung an der Anode sowohl oxidiert als auch reduziert, insbesondere hydriert wird.
 - 3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Elektrode mit mindestens einem Hydrierkatalysator in Kontakt ist, insbesondere mit einem Edelmetall.

- 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Hydrierkatalysator, insbesondere das Edelmetall, auf einem Graphitfilz aufgebracht ist.
- Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Hydrierkatalysator auf
 die Anode angeschwemmt ist.

- 6. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Hydrierkatalysator in Form einer Suspension in Kontakt zur Anode gebracht wird.
- 7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die organische Verbindung an der Kathode sowohl reduziert als auch oxidiert, insbesondere oxygeniert wird.

- 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Elektrode eine Gasdiffusionselektrode ist.
- 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche 1 bis 8, wobei die organische Verbindung Furan und/oder ein Furanderivat ist.

onal Application No PCT/EP 00/09135

A	CL	ASSIFI	CATIO	N OF	SUB.	JECT	MAT	TER
T	PC	7	C25	B3/	' 00			

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

CHEM ABS Data, EPO-Internal, WPI Data

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No
(US 4 544 450 A (ERMANNO OBERRAUCH) 1 October 1985 (1985-10-01) column 4, line 6 - line 12 column 5 -column 6; examples 5,6 column 1, line 31 - line 53 -	1-3,6
	-/	
		-
χ Fur	her documents are listed in the continuation of box C. Patent family members	are listed in annex.

- "A" document defining the general state of the considered to be of particular relevance
- earlier document but published on or after the international filing date
- document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- document referring to an oral disclosure, use, exhibition or
- document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
- cited to understand the principle or theory underlying the
- document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled

Date of mailing of the international search report

& document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

30/01/2001

Authorized officer

17 January 2001

Name and mailing address of the ISA

Groseiller, P

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016



Ints ional Application No PCT/EP 00/09135

A	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	Determent to also at
Category °	Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 20, 19 May 1980 (1980-05-19) Columbus, Ohio, US; abstract no. 171531, MONAKHOVA, I. S.: "Synthesis and reactions of some methoxy derivatives of	1,2,9
	furan compounds" XP002156120	· -
	abstract & VSES. NAUCHN. KONF. KHIM. TEKHNOL. FURANOVYKH SOEDIN., 'TEZISY DOKL.!, 3RD (1978), 136. EDITOR(S): STRADYN, YA. P. PUBLISHER: ZINATNE, RIGA, USSR., 1978,	
A	US 4 318 783 A (HANS-ROLF BUHMANN) 9 March 1982 (1982-03-09) column 13 -column 14; claims 1-3	1 .
A	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 89, no. 22, 27 November 1978 (1978-11-27) Columbus, Ohio, US; abstract no. 187868, HORANYI, GYORGY ET AL: "Electrochemical behavior of ethylene glycol and its	1
	oxidation products at the platinum electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25, 1978,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	-
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 abstract & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	



Information on patent family members

Inte onal Application No PCT/EP 00/09135

Patent document cited in search repor	t	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4544450	A	01-10-1985	IT 1132194 B AT 371151 B AT 302181 A BE 889625 A CH 650277 A DE 3127975 A DK 311881 A FR 2486968 A GB 2080335 A, I JP 57051271 A NL 8103367 A NO 812406 A SE 8104359 A	25-06-1986 10-06-1983 15-10-1982 14-01-1982 15-07-1985 06-05-1982 16-01-1982 22-01-1982 26-03-1982 26-03-1982 01-02-1982 18-01-1982 16-01-1982
US 4318783	Α .	09-03-1982	DE 2851732 A DE 2923531 A DE 2930480 A DE 2961906 D EP 0012240 A JP 55079885 A	12-06-1980 11-12-1980 12-02-1981 04-03-1982 25-06-1980 16-06-1980

		-	PCT/EP 00	/09135			
A. KLASSIF IPK 7	TZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C25B3/00						
11 K / C25B3/ 00							
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK							
	RCHIERTE GEBIETE ter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbo	de)					
IPK 7	C25B	ne)	-				
Recherchier	Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen						
Während de	r internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (N	ame der Datenbank und	evtl. verwendete S	Suchbegriffe)			
CHEM A	BS Data, EPO-Internal, WPI Data	·					
U	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·						
A 416 WE	OF AN AND PRIVATE INTERNATIONS						
Kategorie°	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe	der in Retracht kommen	den Teile	Betr. Anspruch Nr.			
Rategorie	beleasing of velocimentary, some enough and file August	- CONTROLLED CONTROL		ccu. Anopidar IV.			
x	US 4 544 450 A (ERMANNO OBERRAUCH	1)		1-3,6			
[1. Oktober 1985 (1985-10-01)		• •,•				
	Spalte 4, Zeile 6 - Zeile 12						
	Spalte 5 -Spalte 6; Beispiele 5,6 Spalte 1, Zeile 31 - Zeile 53						
	Sparte 1, Zerie 31 - Zerie 33						
	· -	/					
	ere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu ehmen	X Siehe Anhang P	atentfamilie				
	•	"T" Spätere Veröffentlichu oder dem Prioritätsda	ıng, die nach dem atum veröffentlicht	internationalen Anmeldedatum worden ist und mit der			
A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Gerinder eine der Erfindung zugrundeliegenden Prinzps oder der ihr zugrundeliegende							
E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung							
1't Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- schainen zu lassen order durch fün das Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tähnkeit benühend betrachtet werden.							
, 301100	en im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden der die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie	kann nicht als aut ert	inderischer Tätigk	eit beruhend betrachtet			
O Veröffe	ausgerunn) werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen 'O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und						
P Veröffe	eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist						
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts							
_							
	7. Januar 2001	30/01/20	U1 <u></u>				
Name und	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2	Bevollmächtigter Bed	diensteter				
	Europassches Patentarit, P.B. 3618 Patentiaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tet. (+31–70) 340–2040. Tx. 31 651 epo nl,		_				
}	Fac: (+31-70) 340-2040, 1X: 31 651 epo III,	Groseill	er, P				

1



PCT/EP 00/09135

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Ą	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 20, 19. Mai 1980 (1980-05-19) Columbus, Ohio, US; abstract no. 171531,	1,2,9
	MONAKHOVA, I. S.: "Synthesis and reactions of some methoxy derivatives of furan compounds"	
-	XP002156120 Zusammenfassung & VSES. NAUCHN. KONF. KHIM. TEKHNOL.	
	FURANOVYKH SOEDIN., 'TEZISY DOKL.!, 3RD (1978), 136. EDITOR(S): STRADYN, YA. P. PUBLISHER: ZINATNE, RIGA, USSR., 1978,	
1	US 4 318 783 A (HANS-ROLF BUHMANN) 9. Mārz 1982 (1982-03-09) Spalte 13 -Spalte 14; Ansprüche 1-3	1
4	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 89, no. 22, 27. November 1978 (1978-11-27)	1
	Columbus, Ohio, US; abstract no. 187868, HORANYI, GYORGY ET AL: "Electrochemical behavior of ethylene glycol and its	
	oxidation products at the platinum electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with	-····
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978),	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
-	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	
	electrode. I. Electroreduction of oxo-containing bifunctional compounds with two carbon atoms in acidic media" XP002156121 Zusammenfassung & ACTA CHIM. ACAD. SCI. HUNG. (1978), 97(3), 313-25,	

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inte. Snales Aktenzeichen
PCT/EP 00/09135

Im Recherch nbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der V röffentlichung
US 4544450 A	01-10-1985	IT 1132194 B AT 371151 B AT 302181 A BE 889625 A CH 650277 A DE 3127975 A DK 311881 A FR 2486968 A GB 2080335 A,B JP 57051271 A NL 8103367 A NO 812406 A SE 8104359 A	25-06-1986 10-06-1983 15-10-1982 14-01-1982 15-07-1985 06-05-1982 16-01-1982 22-01-1982 03-02-1982 26-03-1982 01-02-1982 18-01-1982 16-01-1982
US 4318783 A	09-03-1982	DE 2851732 A DE 2923531 A DE 2930480 A DE 2961906 D EP 0012240 A JP 55079885 A	12-06-1980 11-12-1980 12-02-1981 04-03-1982 25-06-1980 16-06-1980